

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-092308

(43)Date of publication of application : 04.04.1997

(51)Int.Cl.

H01M 8/02
H01M 8/04
H01M 8/10

(21)Application number : 07-241162

(71)Applicant : FUJI ELECTRIC CO LTD

(22)Date of filing : 20.09.1995

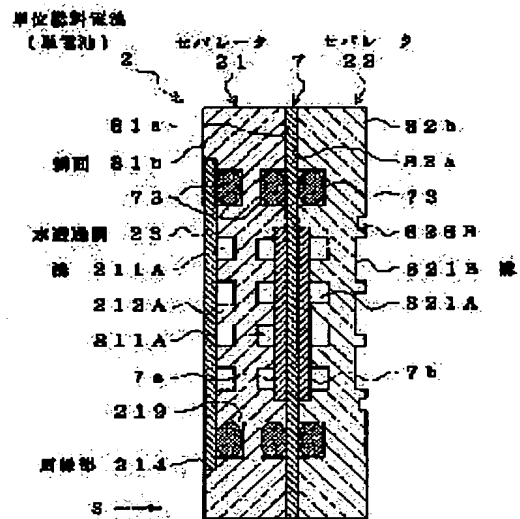
(72)Inventor : URABE KYOICHI

(54) SOLID POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a solid polymer electrolyte fuel cell integrally containing a humidifying part for reaction gas.

SOLUTION: A unit fuel cell (unit cell) 2 possessed by this solid polymer electrolyte fuel cell, uses separators 21, 22 as separators in the light of a conventional one, and is provided with a water permeable film 23 having moisture permeability. The separator 21 has a humidifying part for fuel gas on the side surface 81b side to the conventional example. Namely, the separator 21 has a recessed groove 211A and a peripheral part 214 for installing the water permeable film 23 on the side surface 81b side. The fuel gas passing in the groove 211A is humidified through the water permeable film 23 by a heat medium (water) passing in a groove 821B which is a heat exchange part possessed by an adjacent unit cell 2.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-92308

(43) 公開日 平成9年(1997)4月4日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M	8/02		H 0 1 M	8/02
	8/04			8/04
	8/10			8/10

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願平7-241162
(22) 出願日 平成7年(1995)9月20日

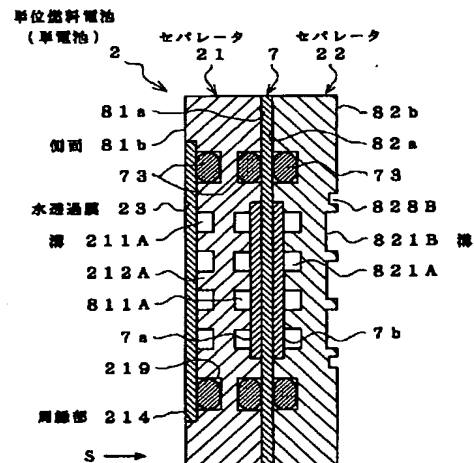
(71) 出願人 000005234
富士電機株式会社
神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号
(72) 発明者 ト部 恭一
神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号
富士電機株式会社内
(74) 代理人 弁理士 山口 敏

(54) 【発明の名称】 固体高分子電解質型燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 反応ガス用の加湿部を一体に内蔵する固体高分子電解質型燃料電池を提供する。

【解決手段】 この発明になる固体高分子電解質型燃料電池が備える単位燃料電池 (単電池) 2 は、従来例に対して、セパレータとしてセパレータ 21、22 を用いると共に、透湿性を有する膜である水透過膜 23 を備えるようにしている。セパレータ 21 は、従来例に対して側面 81b 側に燃料ガス用の加湿部が備えられている。すなわち、セパレータ 21 は側面 81b 側に、凹状の溝 211A と水透過膜 23 を装着するための周縁部 214 が備えられている。そうして、溝 211A 中を流通する燃料ガスは、隣接する単電池 2 などが持つ熱交換部である溝 821B 中を流通する熱媒 (水) によって、水透過膜 23 を介して加湿されるのである。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】シート状の固体高分子電解質材の電解質膜と、その両主面のそれぞれに接合された燃料電極膜および酸化剤電極膜とを持ち、燃料ガスおよび酸化剤ガスとなる反応ガスの供給を受けて直流電力を発生する燃料電池セルと、燃料電池セルの両主面のそれぞれに対向させて配置されたセパレータとを有する単位燃料電池の複数個を互いに積層して備え、セパレータは、燃料電池セルと対向される側の面に燃料電池セルに供給されるそれぞれの反応ガスを通流させるための通流路が形成されてなる固体高分子電解質型燃料電池において、

少なくとも一方の反応ガスを加湿する加湿部を単位燃料電池の積層部分に備えたことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 2】請求項 1 に記載の固体高分子電解質型燃料電池において、加湿部は透湿性を有する膜を用いてなり、この膜はいずれかの単位燃料電池が有するセパレータに装着され、少なくとも一方の反応ガスは前記の膜の一方の側面に接触され、前記の膜の他方の側面には加湿用の水が接触されてなることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 3】請求項 2 に記載の固体高分子電解質型燃料電池において、

加湿部に用いられる透湿性を有する膜は、シート状の固体高分子電解質材の電解質膜と隣接する部位に、前記の電解質膜が配置されている面とほぼ同等位置となる面に配置されてなることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 4】請求項 2 に記載の固体高分子電解質型燃料電池において、

加湿部に用いられる透湿性を有する膜は、セパレータの反応ガスを通流させるための通流路が形成された側に対して反対となる側に配置されてなることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 5】請求項 4 に記載の固体高分子電解質型燃料電池において、

それぞれの単位燃料電池は、燃料ガスを通流させるための通流路を有する一方のセパレータと酸化剤ガスを通流させるための通流路を有する他方のセパレータとでなる 1 対のセパレータを備え、少なくとも他方のセパレータの全てには、酸化剤ガスを通流させるための通流路が形成された側とは反対となる側に水を用いる熱交換部が形成されてなり、透湿性を有する膜が配置されたセパレータを有する単位燃料電池は、前記の膜の外側面が、隣接する単位燃料電池が有するセパレータに形成された熱交換部に用いられている水に接触されてなることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、固体高分子電解

質型燃料電池に係わり、固体高分子電解質型燃料電池に供給される反応ガスを加湿するための加湿部を、単位燃料電池内に一体に内蔵するように改良されたその構造に関する。

05 【0002】

【従来の技術】燃料電池は水素と酸素とを利用して直流電力を発生する一種の発電装置であり、他のエネルギー機関と比較して電気エネルギーへの変換効率が高く、しかも炭酸ガスや窒素酸化物等の大気汚染物質の排出量が少ないことから、いわゆるクリーン・エネルギー源として期待されている。この燃料電池としては、使用される電解質の種類により、固体高分子電解質型、りん酸型、熔融炭酸塩型、固体酸化物型などの各種の燃料電池がすでに知られている。これ等の内、固体高分子電解質型燃料電池は、分子中にプロトン（水素イオン）交換基を有する高分子樹脂膜（以降、固体高分子電解質膜または単に P E 膜と略称することがある。）を飽和に含水させると、プロトン導電性電解質として機能して低い電気抵抗率を持つようになることを利用した燃料電池である。固体高分子電解質膜（P E 膜）としては、パーフルオロスルホン酸樹脂膜（例えば、米国のデュボン社製、商品名ナフイオン膜）を代表とするフッ素系イオン交換樹脂膜が現時点では著名であるが、この他に炭化水素系イオン交換樹脂膜、複合樹脂膜等が用いられている。これ等の P E 膜はいずれも、飽和に含水されることによりプロトン導電性電解質として機能する膜であり、常温で 20

〔Ω・cm〕以下の電気抵抗率を示す。この種の装置として同じ出願人より出願された固体高分子電解質型燃料電池が、特開平 6 - 9 6 7 7 7 号公報により公知となっている。以下に、この特開平 6 - 9 6 7 7 7 号公報により公知となっている固体高分子電解質型燃料電池の内容を基にして、従来例の固体高分子電解質型燃料電池について説明する。

【0003】まず、従来例の固体高分子電解質型燃料電池が備える単位燃料電池を、図 1 4 ~ 図 1 7 を用いて説明する。ここで、図 1 4 は、従来例の固体高分子電解質型燃料電池が備える単位燃料電池の要部を展開した状態で模式的に示したその横断面図である。図 1 5、図 1 6、図 1 7 は、図 1 4 中に示したセパレータの図 1 4 におけるそれぞれ P 矢、Q 矢、R 矢方向から見た図である。図 1 4 ~ 図 1 7 において、8 は、燃料電池セル 7 と、その両主面のそれぞれに対向させて配置されたセパレータ 8 1、8 2 などで構成された単位燃料電池（以降、単電池と略称することがある。）である。燃料電池セル 7（以降、単にセルと略称することがある。）は、いずれもシート状の固体高分子電解質膜 7 C と、固体高分子電解質膜 7 C の両主面のそれぞれに接着された燃料電極膜（アノード極でもある。）7 A、酸化剤電極膜（カソード極でもある。）7 B とで構成されている。このセル 7 は、燃料電極膜 7 A に後記する燃料ガス 9 7

の、また、酸化剤電極膜 7 B に後記する酸化剤ガス 9 8 の供給をそれぞれ受けて、後記する電気化学反応によって直流電力を発生する。固体高分子電解質膜 7 C には、前記の P E 膜が用いられており、燃料電極膜 7 A の外側面が、燃料電池セル 7 の一方の主面 7 a であり、酸化剤電極膜 7 B の外側面が、燃料電池セル 7 の他方の主面 7 b である。

【0004】燃料電極膜 7 A、酸化剤電極膜 7 B（以降、共に単に電極膜と略称することがある。）は共に、触媒活物質を含む触媒層と電極基材を備えて構成され、触媒層側で P E 膜 7 C の両主面にホットプレスにより密着させるのが一般である。電極基材は、触媒層を支持すると共に反応ガス（以降、燃料ガスと酸化剤ガスを総称してこのように言うことが有る。）の供給・排出を行い、しかも集電体としての機能も有する多孔質のシート（使用材料としては、例えば、カーボンペーパーが用いられる。）である。電極膜 7 A、7 B のそれぞれに反応ガスが供給されると、両電極膜 7 A、7 B に備えられた触媒層と P E 膜 7 C との界面に、気相（反応ガス）・液相（P E 膜）・固相（両電極膜が持つ触媒）の三相界面が形成され、電気化学反応を生じさせることで直流電力を発生させている。なお、触媒層は多くの場合に、微小な粒子状の白金触媒とは水性を有するフッ素樹脂とから形成され、しかも層内に多数の細孔が形成されるようにすることで、反応ガスの三相界面までの効率的な拡散を実現すると共に、十分広い面積の三相界面が形成されるように構成されている。この三相界面では次記する電気化学反応が生じる。

【0005】まず、燃料電極膜 7 A 側では「1 式」による電気化学反応が起こる。

【0006】

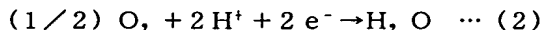
【化 1】



また、酸化剤電極膜 7 B 側では「2 式」による電気化学反応が起こる。

【0007】

【化 2】



すなわち、これらの電気化学反応の結果、電極膜 7 A で生成された H^+ イオン（プロトン）は、P E 膜 7 C 中を電極膜 7 B に向かって移動し、また、電子（ e^- ）は、固体高分子電解質型燃料電池の図示しない負荷装置を通して電極膜 7 B に移動する。一方、電極膜 7 B では、酸化剤ガス 9 8 中に含有される酸素と、P E 膜 7 C 中を電極膜 7 A から移動してきた H^+ イオンと、図示しない負荷装置を通して移動してきた電子とが反応し、 H_2O （水蒸気）が生成される。かくして固体高分子電解質型燃料電池は、水素と酸素とを得て直流電力を発生し、そして副生成物として H_2O （水蒸気）を生成することになる。前記の機能を備えるセル 7 の厚さ寸法は、多く

の場合に 1〔mm〕前後程度あるいはそれ以下であり、セル 7 において P E 膜 7 C は、燃料ガス 9 7 と酸化剤ガス 9 8 との混合を防止するためのシール用膜の役目も兼ねていることになる。

05 【0008】また、セパレータ 8 1、8 2 のそれぞれは、セル 7 への反応ガスの供給と、余剰となった反応ガスのセル 7 からの排出、セル 7 で発生された直流電力のセル 7 からの取り出し、直流電力の発生に関連してセル 7 で発生する熱をセル 7 から除去する役目などを担っている。セパレータ 8 1、8 2 は、ガスを透過せず、かつ、良好な熱伝導性・電気伝導性を備え、しかも、生成水を汚損させることの無い材料（例えば、炭素系の材料、金属材料が使用されている。）を用いて、直方体状に形成されている。セパレータ 8 1、8 2 は、セル 7 と
10 対向し合う側面 8 1 a、8 2 a と、側面 8 1 a、8 2 a と反対側の側面 8 1 b、8 2 b を有しており、セパレータ 8 1 は側面 8 1 a 側をセル 7 の主面 7 a 側に、セパレータ 8 2 は側面 8 2 a 側をセル 7 の主面 7 b 側に、それぞれ密接させてセル 7 を挟むようにして配設されてい
15 る。

【0009】セパレータ 8 1、8 2 には、セル 7 に反応ガスの供給、排出を行うための通流路として、セル 7 と対向される側の面に沿って、それぞれのガスを通流させる凹状の溝が複数個備えられている。すなわち、セパレータ 8 1 の側面 8 1 a 側には、燃料ガス 9 7 を通流させると共に、未消費の水素を含む余剰となった燃料ガス 9 7 を排出するための間隔を設けて設けられた凹状の溝 8 1 1 A と、この溝 8 1 1 A 間に介在する凸状の隔壁 8 1 2 A とが、互いに交互に形成されている。セパレータ 8
25 2 の側面 8 2 a 側には、酸化剤ガス 9 8 を通流させると共に、未消費の酸素を含む余剰となった酸化剤ガス 9 8 を排出するための間隔を設けて設けられた凹状の溝 8 2 1 A と、この溝 8 2 1 A 間に介在する凸状の隔壁 8 2 2 A とが、互いに交互に形成されている。

30 【0010】図 1 5 中に示すように、セパレータ 8 1 に形成されているそれぞれの溝 8 1 1 A の両端部は、これ等の溝 8 1 1 A が互いに並列になって、凹形の溝状に形成されたマニホール 8 1 3 A、8 1 3 A に連通されている。このマニホール 8 1 3 A、8 1 3 A の端部に
40 は、側面 8 1 b に開口する 1 対の貫通穴 8 1 5 A、8 1 6 A が形成されている。セパレータ 8 1 において、燃料ガス 9 7 は貫通穴 8 1 5 A から流入され、貫通穴 8 1 6 A から流出される。貫通穴 8 2 7 A、8 2 8 A は、セパレータ 8 1 内における酸化剤ガス 9 8 通流用の貫通穴である。
45

【0011】また、図 1 6 中に示すように、セパレータ 8 2 に形成されているそれぞれの溝 8 2 1 A の両端部は、これ等の溝 8 2 1 A が互いに並列になって、凹形の溝状に形成されたマニホール 8 2 3 A、8 2 3 A に連
50 通されている。このマニホール 8 2 3 A、8 2 3 A の

端部には、側面 8 2 b に開口する 1 対の貫通穴 8 2 5 A、8 2 6 A が形成されている。セパレータ 8 2 において、酸化剤ガス 9 8 は貫通穴 8 2 5 A から流入され、貫通穴 8 2 6 A から流出される。貫通穴 8 1 7 A、8 1 8 A は、セパレータ 8 2 内における燃料ガス 9 7 通流用の貫通穴である。

【0012】また、セパレータ 8 1、8 2 には、セル 7 で発生した熱をセル 7 から除去するための熱交換部として、熱媒 9 9 を通流させる溝が備えられている。すなわち、セパレータ 8 1 には、その側面 8 1 b 側に熱媒 9 9 を通流させる凹状の溝 8 1 1 B が形成され、セパレータ 8 2 にも、その側面 8 2 b 側に熱媒 9 9 を通流させる凹状の溝 8 2 1 B が形成されている。セパレータ 8 1 に形成されている貫通穴 8 1 5 B、8 1 6 B は、溝 8 1 1 B に連通された熱媒 9 9 通流用の貫通穴であり、セパレータ 8 2 に形成されている貫通穴 8 2 5 B、8 2 6 B は、溝 8 2 1 B に連通された熱媒 9 9 通流用の貫通穴である。セパレータ 8 2 について図 1 7 中に示すように、それぞれの溝 8 2 1 B の両端部は、それぞれ凹形の溝状に形成されたマニホールドに連通され、その端部で、側面 8 2 a に開口する貫通穴 8 2 5 B、8 2 6 B に連なっている。セパレータ 8 2 においては、熱媒 9 9 は貫通穴 8 2 5 B から流入され、貫通穴 8 2 6 B から流出される。

【0013】さらに、7 3 は、前記したガス通流路中を通流する反応ガスが、ガス通流路外に漏れ出るのを防止する役目を負う弾性材製のガスシール体（例えば、リングである。）である。ガスシール体 7 3 は、それぞれのセパレータ 8 1、8 2 の周縁部に形成された凹形状の溝 8 1 9、8 2 9 内に収納されて装着されている。また、熱交換部である溝 8 1 1 B、8 2 1 B を取り巻いて形成された凹形状の溝 8 1 8 B、8 2 8 B は、熱媒 9 9 が漏れ出るのを防止するための、弾性材製のシール体（例えば、リングである。）を収納するためのものである。

【0014】ところで公知のごとく、1 個のセル 7 が発生する電圧は、1 [V] 程度以下と低い値である。このため、前記の構成を持つ単電池 8 は、その複数個（数十個程度あるいはそれ以上であることが多い。）を、セル 7 の発生電圧が互いに直列接続されるように積層した単電池の積層体として構成し、電圧を高めて用いられるのが一般である。次に、この単電池の積層体である固体高分子電解質型燃料電池の従来例について説明する。

【0015】図 1 8 は、従来例の固体高分子電解質型燃料電池を模式的に示した要部の側面図であり、図 1 9 は、図 1 8 に示した従来例の固体高分子電解質型燃料電池の反応ガスの供給経路を説明する説明図である。図 1 8、図 1 9 において、図 1 4～図 1 7 に示した単電池と同一部分には同じ符号を付しその説明を省略する。なお図 1 8、図 1 9 中には、図 1 4～図 1 7 で付した符号については、代表的な符号のみを記した。図 1 8、図 1 9

において、9 は、複数（図 1 8 では、単電池 8 の個数が 8 個である場合を例示した。）の単電池 8 を積層して構成された、単電池 8 の積層体を主体とする固体高分子電解質型燃料電池（以降、スタックと略称することがある。）である。

【0016】スタック 9 は、単電池 8 の積層体の両端部に、単電池 8 で発生した直流電力をスタック 9 から取り出すための、銅材等の導電材製の集電板 9 1、9 2 と、単電池 8、集電板 9 1、9 2 を構造体から電氣的に絶縁するための電気絶縁材製の電気絶縁板 9 3、9 4 と、電気絶縁板 9 3、9 4 の両外側面側に配設される鉄材等の金属製の加圧板 9 5、9 6 とを順次積層して構成されている。そうして、加圧板 9 5、9 6 にそれぞれの外側面側から複数の締付けボルト 9 5 9 により適度の加圧力を与えるようにしている。集電板 9 1、電気絶縁板 9 3 には、セパレータ 8 1 が持つ貫通穴 8 1 5 A、8 2 8 A、8 1 5 B と合致する部位に、これ等の貫通穴と同様の図示しない貫通穴がそれぞれ形成され、また加圧板 9 5 には、貫通穴 8 1 5 A、8 2 8 A と合致する部位に、管用めねじ付きの貫通穴 9 5 1、9 5 2 が形成され、貫通穴 8 1 5 B と合致する部位に配管接続体 9 9 1 が装着されている。集電板 9 2、電気絶縁板 9 4 には、セパレータ 8 2 が持つ貫通穴 8 1 8 A、8 2 5 A、8 2 6 B と合致する部位に、これ等の貫通穴と同様の図示しない貫通穴がそれぞれ形成され、また加圧板 9 6 には、貫通穴 8 1 8 A、8 2 5 A と合致する部位に、管用めねじ付きの貫通穴 9 6 2、9 6 1 が形成され、貫通穴 8 2 6 B と合致する部位に配管接続体 9 9 1 が装着されている。

【0017】これ等により、複数の単電池 8 を積層する際に、全部の単電池 8 がそれぞれに持つ溝 8 1 1 A は、燃料ガス 9 7 用のガス通流路に関して互いに連通されることになる。このことは酸化剤ガス 9 8 用の溝 8 2 1 A に関しても同様である。そうして、加圧板 9 5 の貫通穴 9 5 1 には燃料ガス 9 7 が、加圧板 9 6 の貫通穴 9 6 1 には酸化剤ガス 9 8 がそれぞれ供給され、図 1 9 中に示したように各セパレータ内を通流し、余剰分の燃料ガス 9 7 は貫通穴 9 6 2 から、余剰分の酸化剤ガス 9 8 は貫通穴 9 5 2 からそれぞれ排出される。そうして反応ガスは図 1 9 中に矢印を付したごとく、ガス通流用の溝 8 1 1 A、8 2 1 A 中を、その供給側を重力方向に対して上側に、その排出側を重力方向に対して下側になるように配置されるのが一般である。これは、セル 7 においては、前記したように、発電時には副生成物として水蒸気が生成されるが、この水蒸気のために、下流側の反応ガスほど多量に水蒸気が含まれることとなり、この結果、排出端付近の反応ガスでは過飽和に相当する水蒸気が凝縮して液体状態の水として存在することとなる可能性が有るためである。前記の配置とすることで、凝縮した水は、反応ガス通流用の溝 8 1 1 A、8 2 1 A 中を重力により自力で流下できるので、その除去が容易になる

のである。また単電池 8 がそれぞれに持つ溝 8 1 1 B、8 2 1 B も、熱媒 9 9 の通流路に関して互いに連通されることになり、熱媒 9 9 は、加圧板 9 5 の配管接続体 9 9 1 からスタック 9 に流入され、加圧板 9 6 の配管接続体 9 9 1 からスタック 9 の外部に排出される。そして、前記した諸貫通穴とセパレータ 8 1、8 2 が持つ諸貫通穴の開口部には、それぞれの貫通穴を取り巻いて図示を省略した凹形状の溝が形成されており、これ等の溝には Oリング等の図示しないシール体が装着されている。

【0018】締付けボルト 9 5 9 は、加圧板 9 5、9 6 に跨って装着される六角ボルト等であり、それぞれの締付けボルト 9 5 9 は、これ等と嵌め合わされる六角ナット等と、安定した加圧力を与えるための皿ばね等と協同して、単電池 8 をその積層方向に加圧する。この締付けボルト 9 5 9 が単電池 8 を加圧する加圧力は、セル 7 の見掛けの表面積あたりで、5 [kg/cm²] 内外程度であるのが一般である。

【0019】前述のように構成されたスタック 9 において、セル 7 に使用されている P E 膜 7 C は、前述したとおりに飽和に含水させることにより良好なプロトン導電性電解質として機能する膜であり、乾燥して含水量が低下した場合には、その電気抵抗値が増大することでスタック 9 の発電性能は低下する。こうしたことの発生を防止するために、セル 7 に供給される反応ガスは適度の湿度値に加湿され、しかも、後記するスタック 9 の運転温度に対応させた温度に加熱されてスタック 9 に供給されている。ところで、P E 膜 7 C 部の温度、従って、単電池 8 の温度は、発電運転時にセル 7 で生成される水分を円滑に蒸発させるなどのために、70~80 [°C] 程度の温度で使用されるのが一般である。また、セル 7 で行われる前記の「1 式」、「2 式」で記述した電気化学反応は、発熱反応である。従って、セル 7 で「1 式」、「2 式」による電気化学反応によって発電を行う際には、発生される直流電力値とほぼ同等値の熱が発生することも避けられないものである。単電池 8 の温度を 70~80 [°C] 程度に維持するためには、この損失による熱をセル 7 から除去する必要がある。

【0020】始動時におけるまだ低温のスタック 9 を 70~80 [°C] 程度の温度に加熱し、また、運転時温度を 70~80 [°C] 程度の温度に維持するために発電運転中のスタック 9 から発熱反応により発生した熱量を除去するのが、市水などの水である熱媒 9 9 の主たる役目である。単電池 8 では、例えば、70~80 [°C] 程度の温度に調整された熱媒である水 9 9 が、セパレータ 8 1、8 2 に形成された溝 8 1 1 B、8 2 1 B 中を通流することで、セル 7 は、その適温に維持されて運転されるのである。なおセパレータとして、一方の側面に燃料ガス 9 7 を通流させる溝 8 1 1 A を、また、他方の側面に酸化剤ガス 9 8 を通流させる溝 8 2 1 A を、それぞれ形

成するようにしたものも知られている。なおまた、単電池として、熱交換部としての熱媒 9 9 を通流させる溝が備えられていないセパレータを用い、その代わりに、単電池の積層体中に、熱交換部としての専用の冷却体を介挿するようにしたスタックも知られている。この場合には、冷却体には適宜の配管を介して熱媒 9 9 の供給を行うことが一般である。

【0021】

【発明が解決しようとする課題】 前述した従来技術による固体高分子電解質型燃料電池（スタック）、例えば、前述のスタック 9 では、前述したところにより、供給される反応ガスは適度の湿度値に加湿されて供給される必要があるが、このために、反応ガスの供給経路には反応ガスの加湿用装置が備えられている。この加湿用装置としては、バブリング式の加湿用装置が採用されるのが一般である。バブリング式の加湿用装置は、一定量の水を貯留したタンクを有しており、反応ガスの加湿をこの貯留された水中に反応ガスを吹き込む（バブリング）ことにより行うものであり、貯留水の温度値を適宜に設定することにより、反応ガスの加湿度を簡単に調整することができる利点を備えている。しかしバブリング式による加湿方式を採用した固体高分子電解質型燃料電池発電装置では、スタックの他に、一定量の水を貯留できるタンク、加熱用のヒータなどを必要とし、発電装置が大形化することになっていた。小型・軽量化を意図する車載用などの固体高分子電解質型燃料電池発電装置にあっては、このことが大きな問題となっている。

【0022】この発明は、前述の従来技術の問題点を鑑みなされたものであり、その目的は、反応ガス用の加湿部を一体に内蔵する固体高分子電解質型燃料電池を提供することにある。

【0023】

【課題を解決するための手段】 この発明では前述の目的は、

1) シート状の固体高分子電解質材の電解質膜と、その両主面のそれぞれに接合された燃料電極膜および酸化剤電極膜を持ち、燃料ガスおよび酸化剤ガスでなる反応ガスの供給を受けて直流電力を発生する燃料電池セルと、燃料電池セルの両主面のそれぞれに対向させて配置されたセパレータとを有する単位燃料電池（単電池）の複数個を互いに積層して備え、セパレータは、燃料電池セルと対向される側の面に燃料電池セルに供給されるそれぞれの反応ガスを通流させるための通流路が形成されてなる固体高分子電解質型燃料電池（スタック）において、少なくとも一方の反応ガスを加湿する加湿部を単電池の積層部分に備えた構成すること、により達成される。

【0024】 従って、反応ガスを加湿する加湿部が単電池の積層部分に備えられることで加湿部はスタックに内蔵されることとなり、スタック外の反応ガスの供給経

路に反応ガス用の加湿用装置を設置することが不要となる。また、

2) 前記 1 項に記載の手段において、加湿部は透湿性を有する膜を用いてなり、この膜はいずれかの単位燃料電池（単電池）が有するセパレータに装着され、少なくとも一方の反応ガスは前記の膜の一方の側面に接触され、前記の膜の他方の側面には加湿用の水が接触されてなる構成とすること、により達成される。

【0025】そうして、前記 1 項による作用を得るに当たり、反応ガスは、透湿性を有する膜によって加湿用の水から隔離されると共に、前記の膜を介して前記の水によって加湿されることとなる。また、

3) 前記 2 項に記載の手段において、加湿部に用いられる透湿性を有する膜は、シート状の固体高分子電解質材の電解質膜と隣接する部位に、前記の電解質膜が配置されている面とほぼ同等位置となる面に配置されてなる構成とすること、により達成される。

【0026】そうして、前記 1 項による作用を得るに当たり、反応ガスは、燃料電池セルが持つ燃料電極膜および／または酸化剤電極膜に供給される過程で、透湿性を有する膜を介して加湿用の水によって加湿されることとなるのである。また、

4) 前記 2 項に記載の手段において、加湿部に用いられる透湿性を有する膜は、セパレータの反応ガスを流通させるための流通路が形成された側に対して反対となる側に配置されてなる構成とすること、により達成される。

【0027】そうして、透湿性を有する膜が設置されるスペースは、燃料電極膜および／または酸化剤電極膜と同等の面積の範囲内に納められるので、前記 1 項による作用を得るに当たり、単電池の面積を、加湿部を持たないものと同等程度とすることが可能となるのである。さらにまた、

5) 前記 4 項に記載の手段において、それぞれの単位燃料電池（単電池）は、燃料ガスを流通させるための流通路を有する一方のセパレータと酸化剤ガスを流通させるための流通路を有する他方のセパレータとでなる 1 対のセパレータを備え、少なくとも他方のセパレータの全てには、酸化剤ガスを流通させるための流通路が形成された側とは反対となる側に水を用いる熱交換部が形成されてなり、透湿性を有する膜が配置されたセパレータを有する単電池は、前記の膜の外側面が、隣接する単電池が有するセパレータに形成された熱交換部に用いられている水に接触されてなる構成とすること、により達成される。

【0028】そうして、前記 1 項による作用を得るに当たり、前記の膜が熱交換部用の水のシール体を兼用することになり、熱交換部のシール構造と加湿部の構造とが単純化され、スタックの単電池積層方向の長さ寸法を、加湿部を持たないものと同等程度とすることが可能となるのである。

【0029】

【発明の実施の形態】以下この発明の実施の形態を図面を参照して詳細に説明する。なお、以下の説明において、図 18～図 19 に示した従来例の固体高分子電解質型燃料電池（スタック）、図 14～図 17 に示した従来例のスタックに用いられた単位燃料電池（単電池）と同一部分には同じ符号を付し、その説明を省略する。また、以下の説明に用いる図中には、図 14～図 19 で付した符号については、代表的な符号のみを記すことがある。

【0030】実施例 1；図 8 は、請求項 1～3 に対応するこの発明の一実施例による固体高分子電解質型燃料電池が備える単位燃料電池の要部を模式的に示したその縦断面図であり、図 9 は、図 8 における A-A 断面図である。図 10 は、図 8 中に示したセパレータの前記図 15 の場合と同一方向から見た図であり、図 11 は、図 8 中に示したセパレータの前記図 16 の場合と同一方向から見た図である。図 12 は、図 8 に示した単位燃料電池を用いた固体高分子電解質型燃料電池を模式的に示した要部の側面図であり、図 13 は、図 12 に示したこの発明による固体高分子電解質型燃料電池の反応ガスと熱媒の供給経路を説明する説明図である。なお、図 12、図 13 中には、図 8～図 11 で付した符号については、代表的な符号のみを記した。図 8～図 13 において、4 は、図 14～図 17 に示した従来例によるスタック 9 が備える単電池 8 に対して、燃料電池セル（セル）7、セパレータ 81、82 などに替えて、セル 5、セパレータ 41、42 などを用いるようにした単電池である。セル 5 は、セル 7 に対して、固体高分子電解質膜（PE 膜）7C に替えて、PE 膜 5C を用いるようにしており、この事例の場合には、PE 膜 5C は PE 膜 7C の 2 倍程度の面積を有している。セル 5 では、燃料電極膜 7A の外側面が、燃料電池セル 5 の一方の主面 5a であり、酸化剤電極膜 7B の外側面が、燃料電池セル 5 の他方の主面 5b である。

【0031】セパレータ 41 は、セパレータ 81 に対して、溝 811A に替えて、燃料ガス 97 の流通方向に沿う長さが溝 811A よりも長い溝 411A を用いており、これに伴って、隔壁 812A、溝 819 も隔壁 412A、溝 419 を用いている。セパレータ 42 は、セパレータ 82 に対して、酸化剤ガス 98 用の溝 821A と、例えば市水である熱媒 99 用の溝 821B とが共に、図 11 に示すごとく、セル 5 の主面 5b と対向する側面 42a 側に形成されていることが異なっている。セパレータ 42 では、酸化剤ガス 98 用の貫通穴 825A の形成位置をセパレータ 82 の場合とは多少異ならせているが、これは、熱交換部である溝 821B の形成部と溝 821A の形成部との間隔を短くするためのものである。またこれに伴い、貫通穴 825A と直接連なるマニホールドには、マニホールド 823A に替えてマニホー

ルド 4 2 3 A が用いられているが、これ等のことはこの発明にとって本質的なものではない。

【0032】そうして単電池 4 は、従来例の単電池 8 の場合と同様に、セパレータ 4 1 はその側面 4 1 a 側をセル 5 の主面 5 a 側に、セパレータ 4 2 はその側面 4 2 a 側をセル 5 の主面 5 b 側にして、セル 5 を挟むようにして配設されている。単電池 4 では、図 8 中に明示したように、セパレータ 4 1、4 2 とを、電極膜 7 A、7 B の形成部と対向する部位に、溝 8 2 1 A と溝 4 1 1 A とを共に位置させるようにして組み合わせられている。そうして、電極膜 7 A、7 B が存在していない部分の P E 膜 5 C の主要部は、溝 8 2 1 B と溝 4 1 1 A とに対向させている。なお単電池 4 では、熱媒 9 9 漏出防止用のガスシール体としてガスシール体 7 3 を、燃料ガス 9 7 漏出防止用のガスシール体として、ガスシール体 7 3 と同様の断面構造を持つガスシール体 4 9 を使用している。

【0033】また、図 1 2、図 1 3 において、3 は、図 1 8、図 1 9 に示した従来例によるスタック 9 に対して、単電池 8、集電板 9 1、9 2、電気絶縁板 9 3、9 4、加圧板 9 5、9 6 に替えて、それぞれ、スタック 3 に用いられるセパレータであるセパレータ 4 1、4 2 に対応する形状、貫通穴位置（図 1 2 を参照。）などを持つ、集電板 3 1、3 2、電気絶縁板 3 3、3 4、加圧板 3 5、3 6 と、前述した単電池 4 を用いるようにしている。

【0034】実施例 1 では前述の構成としたので、図 8、図 1 3 中に明示したように、個々の単電池 4 内において、燃料ガス 9 7 は電極膜 7 A に到達する前に、P E 膜 5 C を介して溝 8 2 1 B、したがって、熱媒である水 9 9 と対向する部位を通流することになる。ところで、P E 膜は、プロトン導電性電解質として機能する前記した性質と共に、すでに良く知られているごとく、膜を通して水を移動できる性質も有している。このため、溝 8 2 1 B と対向する部位の P E 膜 5 C は水 9 9 によって湿潤にされることになり、燃料ガス 9 7 は湿潤にされた P E 膜 5 C に沿って通流する間に水 9 9 によって加湿される。すなわち実施例 1 では、溝 8 2 1 B と対向する部位の P E 膜 5 C が、燃料ガス 9 7 を加湿するための加湿部の主要部分であり、水 9 9 が燃料ガス 9 7 を加湿するための加湿用の水であることになる。また、燃料ガス 9 7 は、P E 膜 5 C によって水 9 9 とは直接に接触しないように隔離されていることになり、加湿用の水 9 9 が電極膜 7 A に侵入することは有り得ないのである。なお、燃料ガス 9 7 の加湿度は、従来例の場合と同様に、水 9 9 の温度値を変更することで調整することが可能である。

【0035】スタック 3 では、P E 膜 5 C を介して水 9 9 によって加湿された燃料ガス 9 7 が燃料電極膜 7 A に供給されるので、電極膜 7 A、7 B の形成部の P E 膜 5 C は、燃料ガス 9 7 から水分が供給されることになる。そうして、電極膜 7 A、7 B の形成部の P E 膜 5 C を加

湿するに当たって、スタック 3 に対する反応ガスの供給経路には、反応ガス用の加湿用装置を設置することが不要となる。また実施例 1 では、スタックに供給される反応ガスの内、燃料ガス 9 7 のみを加湿するようにした事例を示すものであるが、このような構成としても、スタック 3 では電極膜 7 A、7 B の形成部の P E 膜 5 C は、常に適正な含水状態に保たれることが確認されている。このことは、スタック 3 の発電運転時においては、酸化剤電極膜 7 B では、前記の「2 式」で述べたごとく、副生成物として水蒸気が生成されるので、酸化剤ガス 9 8 をあえて加湿する必要が無かったものと考えられる。

【0036】実施例 1 における今までの説明では、単電池 4 は、セパレータ 4 2 に対向させて、溝 8 2 1 A の形成部分と溝 8 2 1 B の形成部分の両者を一体に覆うことができる面積を持つ P E 膜 5 C を備えるとしてきたが、これに限定されるものではなく、例えば、この P E 膜は、溝 8 2 1 A の形成部分と溝 8 2 1 B の形成部分とのそれぞれを、別個の P E 膜で覆うようにしてもよいものである。

【0037】実施例 2 ; 図 1 は、請求項 1、2、4、5 に対応するこの発明の一実施例による固体高分子電解質型燃料電池が備える単位燃料電池の要部を模式的に示したその横断面図であり、図 2 は、図 1 中に示したセパレータの図 1 における S 矢方向から見た図である。図 3、図 4、図 5 は、図 1 中に示したセパレータのそれぞれ前記の図 1 5、図 1 7、図 1 6 の場合と同一方向から見た図である。図 6 は、図 1 に示した単位燃料電池を用いた固体高分子電解質型燃料電池を模式的に示した要部の側面図であり、図 7 は、図 6 に示したこの発明による固体高分子電解質型燃料電池の反応ガスと熱媒の供給経路を説明する説明図である。なお、図 6、図 7 中には、図 1 ~ 図 5 で付した符号については、代表的な符号のみを記した。図 1 ~ 図 7 において、2 は、図 1 4 ~ 図 1 7 に示した従来例によるスタック 9 が備える単電池 8 に対して、セパレータ 8 1、8 2 に替えて、セパレータ 2 1、2 2 を用いると共に、透湿性を有する膜である水透過膜 2 3 を備えるようにした単電池である。セパレータ 2 1 は、従来例のセパレータ 8 1 に対して、側面 8 1 a 側に形成される燃料ガス 9 7 の供給部に関しては溝 8 1 1 A に連通される貫通穴などが変更され、側面 8 1 b 側に関しては、熱交換部である溝 8 1 1 B などに替えて、燃料ガス 9 7 用の加湿部が備えられている。すなわち、セパレータ 2 1 では、溝 8 1 1 A に連通される貫通穴として、従来例のセパレータ 8 1 における貫通穴 8 1 6 A が、貫通穴 2 1 5 A とその符号が変更され、この貫通穴 2 1 5 A と対になる貫通穴 2 1 6 A の形成位置が、従来例のセパレータ 8 1 における貫通穴 8 1 5 A とは異なった位置とされている（図 3 参照。）。これに関連して、貫通穴 2 1 6 A に隣接されるマニホールド 2 1 7 A の形状が、従来例のセパレータ 8 1 におけるマニホールド 8

13Aから見直されている。また、セパレータ21が備える燃料ガス97用の加湿部の、燃料ガス97用の通流部は図2中に示したごとく、燃料ガス97を通流させるための通流路である凹状の溝211Aの複数個が、この溝211A間に介在する凸状の隔壁212Aと共に、互いに交互に形成されている。

【0038】溝211Aの両端部は、これ等の溝211Aが互いに並列になって、凹形の溝状に形成されたマニホール213A、213Aに連通され、このマニホール213A、213Aの端部には、側面81aに開口する1対の貫通穴815A、215Aが形成されている。溝211A、マニホール213A、貫通穴815A、215Aなどからなる燃料ガス97の通流部を巡って、凹形状の溝219が形成されている。セパレータ81において、燃料ガス97は貫通穴815Aから流入され、加湿された燃料ガス97は貫通穴215Aから流出されることになる。ここで、溝211A、隔壁212A、マニホール213A、溝219は、従来例のセパレータ81が備える、溝811A、隔壁812A、マニホール813A、溝819と同形に形成されている。セパレータ21の側面81b側には、周縁部214が額縁形をした堰堤状に形成されている。セパレータ22は、従来例のセパレータ82に対して、貫通穴818Aが削除され、それに替えて貫通穴226Aが追加して形成されていることのみが異なっている。

【0039】そうして単電池2は、セパレータ21をその側面81a側をセル7の主面7a側にし、セパレータ22をその側面82a側をセル7の主面7b側にしてセル7を挟むようにして配設すると共に、この発明による特徴的な構成として、水透過膜23が周縁部214に嵌め込まれて装着されている。この水透過膜23の装着部においては、燃料ガス97は、溝219に装着されたガスシール体73によってシールされている。ところで水透過膜23は、PE膜製であって、PE膜が持っている膜を通して水を移動できる性質を利用したものである。また、図6、図7において、1は、図18、図19に示した従来例によるスタック9に対して、単電池8に替えて、単電池2を用いると共に、端部に位置する単電池2のセパレータ21と集電板91との間に介挿された、セパレータ11を用いるようにしたスタックである。セパレータ11は、セパレータ21、22と同等の材料を用いて構成され、面積方向の寸法、形状はセパレータ22と同一にされ、かつ、セパレータ21と対向する側面側に、重複を避けるためにその図示は省略するが、セパレータ22が持つ熱交換部と同一構成の熱交換部が形成されている。そうして、セパレータ11が持つ熱交換部にも、熱媒である水99が通流される。

【0040】実施例2では前述の構成としたので、図7中にも示したように、燃料ガス97は、貫通穴815Aから個々の単電池2のセパレータ21に流入し、セパレ

ータ21内を、貫通穴815A→溝211A→貫通穴215A→溝811A→貫通穴216Aの経路で通流する。この間、溝211A中を通流している際に、水透過膜23を介して、隣接している単電池2が有するセパレータ22、または、セパレータ11が持つ熱交換部内を通流する熱媒である水99によって加湿される。すなわち実施例2では、溝211Aと対向する部位の水透過膜23が、燃料ガス97を加湿するための加湿部の主要部分であり、水99が燃料ガス97を加湿するための加湿用の水であることになる。また、燃料ガス97は、水透過膜23によって水99とは直接に接触しないように隔離されていることになり、加湿用の水99が電極膜7Aに侵入することは有り得ないのである。

【0041】スタック1では、水透過膜23を介して水99によって加湿された燃料ガス97が燃料電極膜7Aに供給されるので、PE膜7Cには、燃料ガス97から水分が供給されることになる。そうして、スタック1に対する反応ガスの供給経路に反応ガス用の加湿用装置の設置が不要であること、および、燃料ガス97のみの加湿でPE膜7Cを適正な含水状態に保持できることが確認されていることは、スタック3の場合と同様である。そうしてスタック1では、第1に、加湿部をセパレータ21の側面81b側に配置することで、セパレータ21、22の面積を、従来例のセパレータ81、82と同等寸法に納めることが可能であること、第2に、水透過膜23が熱交換部用の水99のシール体を兼用することによって熱交換部のシール構造が単純化され、スタック1の単電池積層方向の長さ寸法を、加湿部を持たないものと同等程度とすることが可能となること、第3に、水透過膜23に与える水を、熱交換部用の水99と共用できることでスタック1に供給される水源の数を低減することが可能となること、などの特長を有している。

【0042】ところで単電池2では、水透過膜23をセパレータ21に形成された周縁部214に嵌め込むことで装着しているが、これは電極膜7A、7Bが装着されていない部位のPE膜7Cは、プロトンが供給されないことで電気絶縁性を示すことに対処するためである。セパレータ21に周縁部214が形成されて、水透過膜23が装着された単電池2には、水透過膜23によって覆われない、したがって露出している側面81bが得られる。この露出部が隣接する単電池2が持つセパレータ22の側面82bなどと直接接触し合うことで、スタック1は、集電板91と集電板92間の電氣的な導通を確保することができているのである。

【0043】実施例2における今までの説明では、セパレータ21には周縁部214が形成されるとしてきたが、これに限定されるものではなく、周縁部214に替えて、例えば、セパレータ21、22、11に電気接続部を形成し、互いに隣接する単電池2のそれぞれが備える前記セパレータの相互間を、適宜の電気接続体を用い

て前記の電気接続部によって接続し合ってもよいものである。

【0044】実施例1, 2における今までの説明では、スタックに供給される反応ガスの内、燃料ガス97のみを加湿するとしてきたが、これに限定されるものではなく、必要である場合には、酸化剤ガス98も加湿してもよいことは、勿論のことである。また、実施例1, 2における今までの説明では、燃料ガス97と酸化剤ガス98とは互いに異なる加圧板からスタックに供給されるとしてきたが、これに限定されるものではなく、例えば、両ガスを同一の加圧板からスタックに供給するようにしても何等差し支えは無いものである。また、実施例1, 2における今までの説明では、加湿部は、スタックが備える全ての単電池に備えるとしてきたが、これに限定されるものではなく、例えば、反応ガスの下流部に位置する単電池には、加湿部の設置が不要である場合も有りえるものである。また、実施例1, 2における今までの説明では、加湿部に用いられる透湿性を有する膜はPE膜であるとしてきたが、これに限定されるものではなく、例えば、セロハン、ポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂などの、透湿性を有する膜であれば適宜の膜であってもよいものである。なお、これ等の透湿性を有する膜もプロトンが供給されない場合のPE膜と同様に、電気絶縁性を持つ材料である。さらにまた、実施例1, 2における今までの説明では、加湿部に用いられる透湿性を有する膜は、単体で使用されるとしてきたが、これに限定されるものではなく、例えば、その両側面または片側面に多孔質のシート材を用いた支持板を介在させてもよいものである。この支持板に用いられる多孔質のシート材としては、電極膜7A, 7Bなどの電極基材として用いられているカーボンペーパーなどが使用可能である。

【0045】

【発明の効果】この発明においては、前記の課題を解決するための手段の項で述べた構成とすることにより、次記する効果を奏する。

■スタックに供給される反応ガスを加湿する例えば透湿性を有する膜を用いた加湿部を単電池の積層部分に備える構成とすることにより、スタックの外部に反応ガスを加湿する加湿装置を設置することが不要となるので、固体高分子電解質型燃料電池装置を用いた発電装置を小型化することが可能となる。また、

■加湿部に用いられる透湿性を有する膜を、セパレータの反応ガスを通流させるための溝が形成された側に対して反対となる側に配置する構成とすることにより、セパレータの面積が、加湿部を持たない場合と同等に納めるこおとが可能となることで、前記■項による効果を得ながら、スタックの面積を加湿部を持たない場合と同等に小型化することが可能となる。

【0046】■それぞれの単電池は1対のセパレータを備え、少なくとも片側のセパレータの全てに酸化剤ガス

を通流させるための溝が形成された側とは反対となる側に水を用いる熱交換部を形成し、かつ、透湿性を有する膜の外側面を隣接する単電池などが持つ熱交換部に用いられる水に接触させる構成とすることにより、透湿性を有する膜に水を与えるための構成が単純化されることで、前記■項、■項による効果を得ながら、スタックの長さ寸法を、加湿部を持たないものと同等程度とすることが可能となる。

【図面の簡単な説明】

10 【図1】請求項1, 2, 4, 5に対応するこの発明の一実施例による固体高分子電解質型燃料電池が備える単位燃料電池の要部を模式的に示したその横断面図

【図2】図1中に示したセパレータの図1におけるS矢方向から見た図

15 【図3】図1中に示したセパレータの後記の図15の場合と同一方向から見た図

【図4】図1中に示したセパレータの後記の図17の場合と同一方向から見た図

20 【図5】図1中に示したセパレータの後記の図16の場合と同一方向から見た図

【図6】図1に示した単位燃料電池を用いた固体高分子電解質型燃料電池を模式的に示した要部の側面図

25 【図7】図6に示したこの発明による固体高分子電解質型燃料電池の反応ガスと熱媒の供給経路を説明する説明図

【図8】請求項1～3に対応するこの発明の一実施例による固体高分子電解質型燃料電池が備える単位燃料電池の要部を模式的に示したその縦断面図

【図9】図8におけるA-A断面図

30 【図10】図8中に示したセパレータの後記の図15の場合と同一方向から見た図

【図11】図8中に示したセパレータの後記の図16の場合と同一方向から見た図

35 【図12】図8に示した単位燃料電池を用いた固体高分子電解質型燃料電池を模式的に示した要部の側面図

【図13】図10に示したこの発明による固体高分子電解質型燃料電池の反応ガスと熱媒の供給経路を説明する説明図

40 【図14】従来例の固体高分子電解質型燃料電池が備える単位燃料電池の要部を展開した状態で模式的に示したその横断面図

【図15】図14中に示したセパレータの図14におけるP矢方向から見た図

45 【図16】図14中に示したセパレータの図14におけるQ矢方向から見た図

【図17】図14中に示したセパレータの図14におけるR矢方向から見た図

【図18】従来例の固体高分子電解質型燃料電池を模式的に示した要部の側面図

50 【図19】図18に示した従来例の固体高分子電解質型

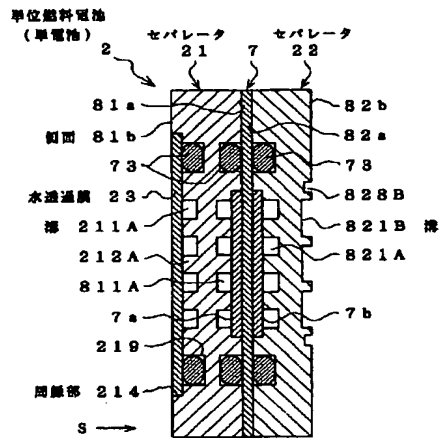
燃料電池の反応ガスの供給経路を説明する説明図

【符号の説明】

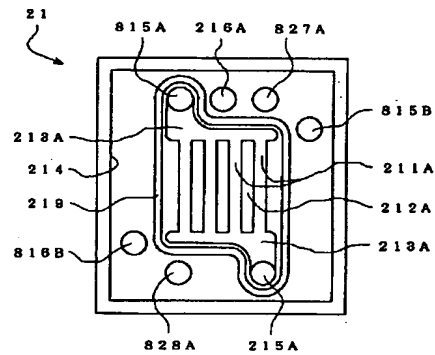
2 単位燃料電池（単電池）
 2 1 セパレータ
 2 1 1 A 溝

2 1 4 周縁部
 2 2 セパレータ
 2 3 水透過膜
 8 1 b 側面
 05 8 2 1 B 溝

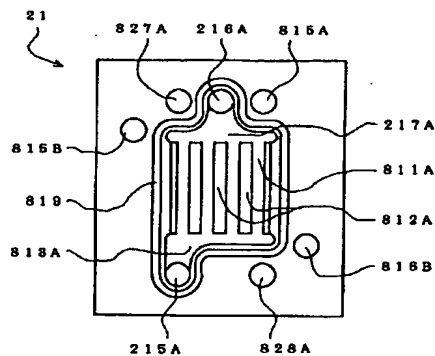
【図 1】



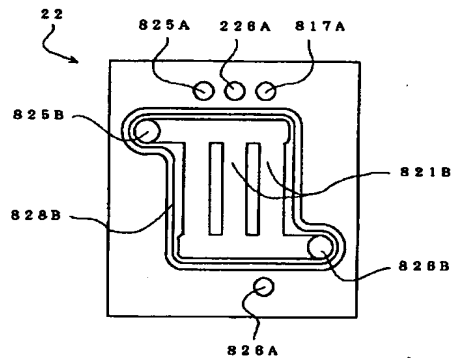
【図 2】



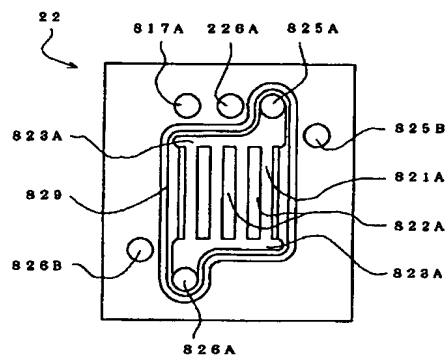
【図 3】



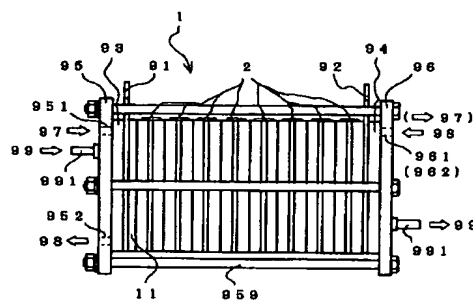
【図 4】



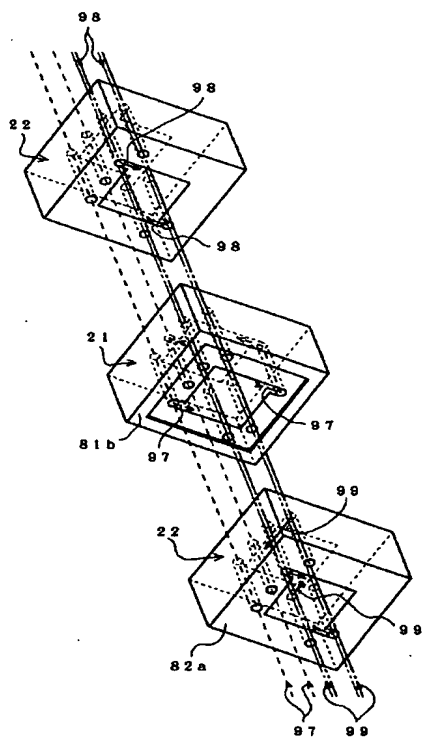
【図5】



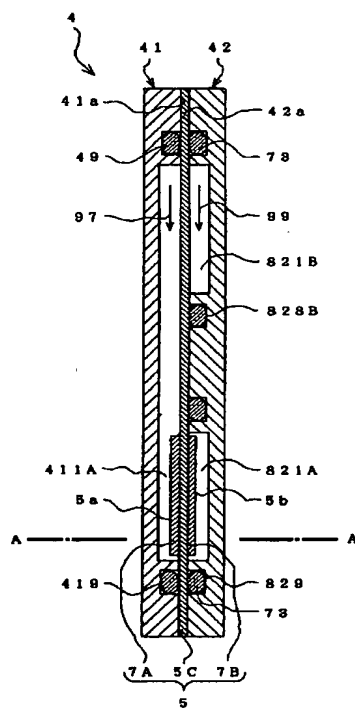
【図6】



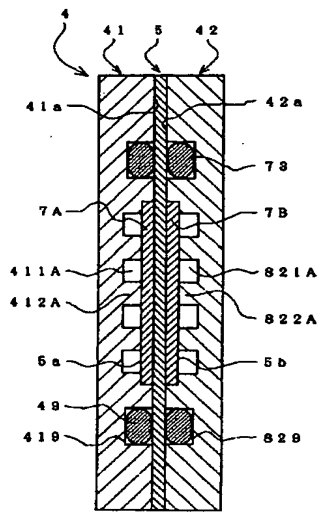
【図7】



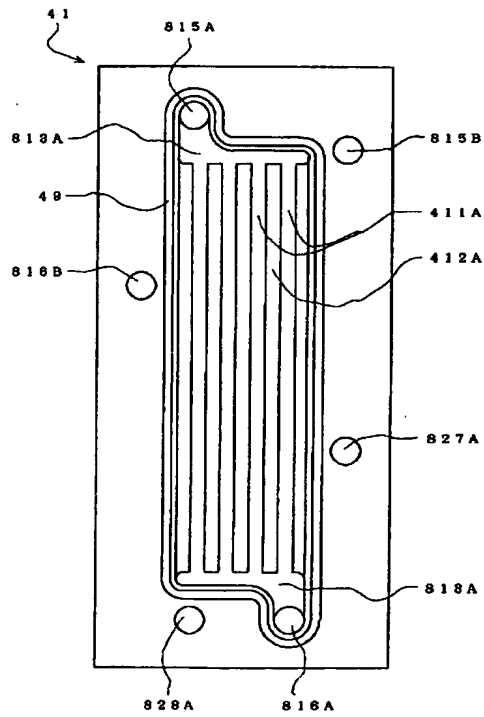
【図8】



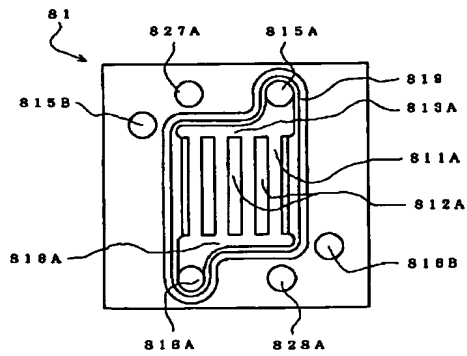
【図 9】



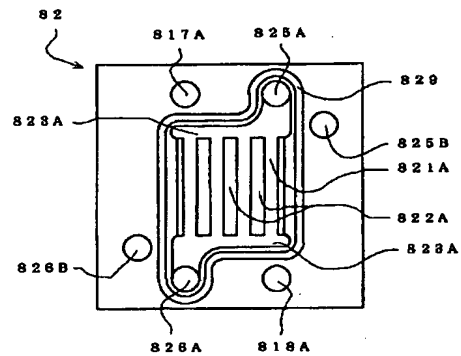
【図 10】



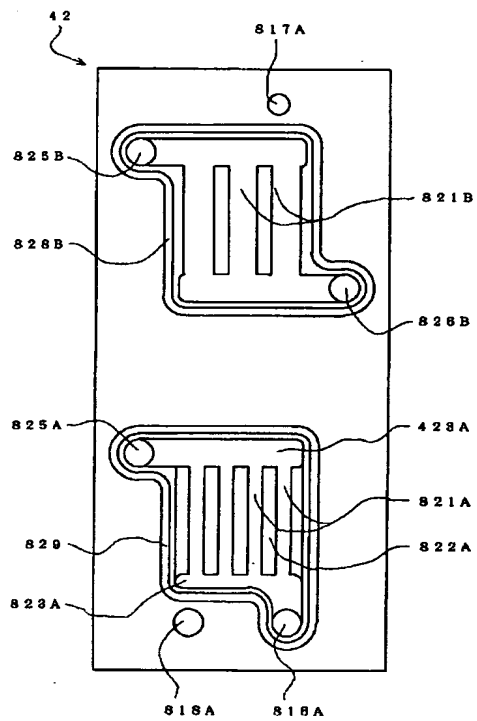
【図 15】



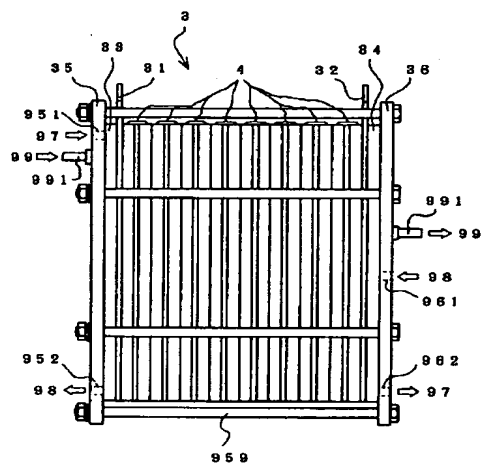
【図 16】



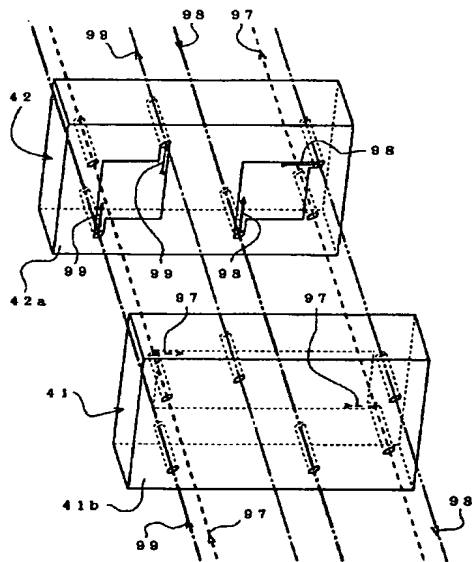
【図11】



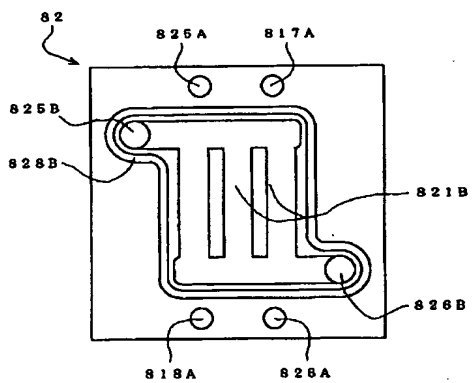
【図12】



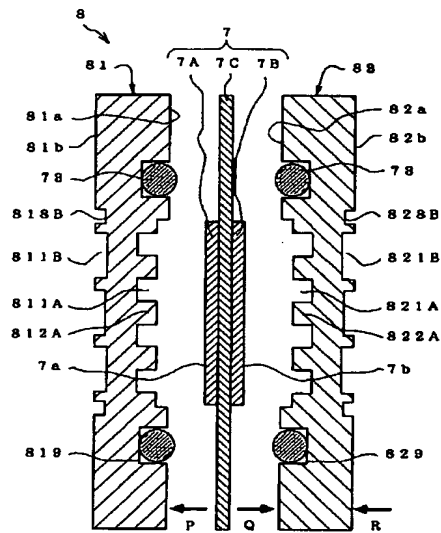
【図13】



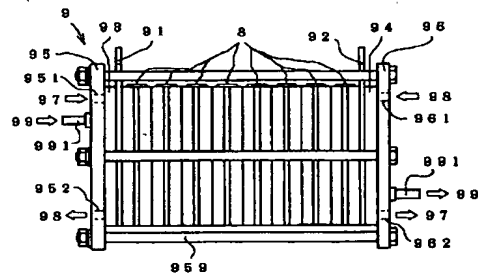
【図17】



【図 14】



【図 18】



【図 19】

